# PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number:

2005-015624

(43) Date of publication of application: 20.01.2005

(51)Int.Cl.

CO8L101/00

C08J 5/18

**CO8K** 3/00

C08K 7/04

GO2B 1/04

GO2F 1/1333

(21)Application number: 2003-182047

(71)Applicant: SUMITOMO BAKELITE CO LTD

(22)Date of filing:

26.06.2003

(72)Inventor: SAKAMOTO MASANOBU

SHIBAHARA SUMIO

### (54) TRANSPARENT COMPOSITE SHEET

#### (57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a transparent composite sheet having a small coefficient of linear expansion, excellent transparency, excellent heat resistance, excellent solvent resistance and high surface smoothness, and suitably usable as an optical sheet, a plastic substrate for a display element or a substrate for an active matrix display element.

SOLUTION: The transparent composite sheet comprises (a) a transparent resin, (b) a fibrous inorganic filler and (c) a powdery inorganic filler. The differences between the refractive index of the transparent resin (a) after curing, and those of the fibrous inorganic filler (b) and the powdery inorganic filler (c) are each ≤0.01, and the Abbe's number of the transparent resin (a) after curing is ≥45. When the transparent composite sheet is used as the substrate for the display element, it is preferable that the light transmittance at 550 nm wavelength is ≥80%, and the average coefficient of linear expansion in 30-150° C is ≤40 ppm.

#### \* NOTICES \*

JPO and INPIT are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.

2.\*\*\*\* shows the word which can not be translated.

e proce grantentalista de familie a processo es . . .

3.In the drawings, any words are not translated.

#### **CLAIMS**

[Claim(s)]

[Claim 1]

A transparent composite sheet which consists of transparent resin (a), a fibrous inorganic filler (b), and a powdered inorganic filler (c).

[Claim 2]

The transparent composite sheet according to claim 1 whose difference of a refractive index after hardening of said transparent resin (a) and a refractive index of a fibrous inorganic filler (b) and a powdered inorganic filler (c) is 0.01 or less.

[Claim 3]

The transparent composite sheet according to claim 1 or 2 whose Abbe number after hardening of said transparent resin (a) is 45 or more.

[Claim 4]

claims 1-3 in which said fibrous inorganic fillers (b) are glass tissue — a transparent composite sheet any or given in 1 paragraph.

[Claim 5]

claims 1-4 in which said powdered inorganic fillers (c) are powder with a ball equivalent average diameter of 0.5 mm or less — a transparent composite sheet any or given in 1 paragraph.

[Claim 6]

claims 1-5 whose light transmission in wavelength of 550 nm is not less than 80% — a transparent composite sheet any or given in 1 paragraph.

[Claim /]

claims 1-6 whose 30-150 \*\* mean coefficients of linear expansion are 40 ppm or less — a transparent composite sheet any or given in 1 paragraph.

[Claim 8]

claims 1-7 -- a display device using a transparent composite sheet any or given in 1 paragraph.

## [Translation done.]

\* NOTICES \*

JPO and INPIT are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

- 1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.\*\*\*\* shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

### **DETAILED DESCRIPTION**

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Field of the Invention]

The coefficient of linear expansion of this invention is small, it has high rigidity, is excellent in transparency, heat resistance, and solvent resistance, and relates to the transparent composite sheet for which glass can be substituted. This transparent composite composition can be used conveniently for optical sheets, such as a substrate for liquid crystal display, an organic electroluminescence display device board, a substrate for light filters, a substrate for touch panels, and a solar cell substrate, a transparent plate, an optical lens, an optical element, an optical waveguide, an LED sealing agent, etc., for example.

[0002]

[Description of the Prior Art]

Generally, many glass plates are used as the substrate for liquid crystal display elements, a color filter substrate, the substrate for organic electroluminescence display devices, a substrate for solar cells, etc. however, it is easy to be divided — it is not bent — specific gravity is greatly unsuitable for a weight saving — many trials which use a plastic material instead of a glass plate have come to be performed from the problem of \*\* in recent years. For example, the transparent resin boards for liquid crystal display elements which become the patent documents 1 and the patent documents 2 from the cured body produced by hardening an epoxy resin composition including an epoxy resin, an acid anhydride system hardening agent, and a curing catalyst are indicated. However, since the coefficient of linear expansion is large, if the conventional plastic material for glass substitution is used for an active—matrix display device board, for example, in the manufacturing process, problems, such as curvature and an open circuit of aluminum wiring, arise, and it is difficult to apply. Then, in order to reduce a coefficient of linear expansion, composite—izing with resin the inorganic filler which has a refractive index equivalent to resin is often performed.

When glass tissue etc. and resin are compounded, even if a coefficient of linear expansion is reduced and it bends, it becomes difficult to divide, but a substrate may be missing at stiffness. According to the composition of glass fiber, anisotropy may arise in a coefficient of linear expansion. In order to avoid these, two or more substrates needed to be laminated and used.

Although the anisotropy of the coefficient of linear expansion was not produced on the other hand when a powdered inorganic filler and resin were compounded, there was a problem which is not enough of being easy to be divided when it bends.

[0003]

[Patent documents 1]

JP,6-337408,A

[Patent documents 2]

JP,7-120740,A

[0004]

[Problem(s) to be Solved by the Invention]

This invention is excellent in transparency, heat resistance, and solvent resistance with a low coefficient of linear expansion, and has high rigidity, It aims at providing the transparent composite sheet used suitably for a transparent plate, an optical lens, the plastic plate for liquid crystal display elements, the substrate for light filters, the plastic plate for organic electroluminescence display devices, a solar cell substrate, a touch panel, etc.

## [0005]

[Means for Solving the Problem]

A linear expansion reduction effect according [ a transparent composite sheet which consists of transparent resin (a), glass tissue (b), and a powder inorganic filler (c) as a result of inquiring wholeheartedly that this invention persons should attain an aforementioned problem ] to glass tissue, According to the rigidity improvement effect by a powder inorganic filler, and a reduction effect of the anisotropy of a coefficient of linear expansion. Have high rigidity with a low coefficient of linear expansion, and it excels in transparency, heat resistance, and solvent resistance, It found out being used suitably for a transparent plate, an optical lens, a plastic plate for liquid crystal display elements, a substrate for light filters, a plastic plate for organic electroluminescence display devices, a solar cell substrate, a touch panel, etc., and resulted in this invention. Namely, this invention,

- (1) A transparent composite sheet which consists of transparent resin (a), a fibrous inorganic filler (b), and a powdered inorganic filler (c),
- (2) A transparent composite sheet of (1) whose a difference of a refractive index after hardening of transparent resin (a) and a refractive index of a fibrous inorganic filler (b) and a powdered inorganic filler (c) is 0.01 or less,
- (3) A transparent composite sheet of (1) and (2) whose Abbe number after hardening of transparent resin (a) is 45 or more,
- (4) A transparent composite sheet of (1) (3) whose fibrous inorganic filler (b) is glass tissue,
- (5) A transparent composite sheet of (1) (4) whose powdered inorganic filler (c) is powder with a ball equivalent average diameter of 0.5 mm or less,
- A transparent composite sheet of (1) (5) whose light transmission in wavelength of 550 nm is not less than 80%,
- A transparent composite sheet of (1) (6) whose 30-150 \*\* mean coefficient of linear expansion is 40 ppm or less
- (8) A transparent composite sheet of (1) (7) whose transparent composite sheet is an optical sheet, a plastic plate for display devices, or a substrate for active-matrix display devices,

It comes out.

[0006]

[Embodiment of the Invention]

Hereafter, this invention is explained in detail.

Transparent resin (a) in this invention shows the resin which has the permeability of visible light. Not less than 80% of thing has the preferred light transmission in 550 nm at the time of using a sheet, and the transparency of transparent resin of this invention is not less than 90% most preferably not less than 85%. When using as a substrate for display devices, not less than 85% is preferred. As an example, the resin etc. over which reactive monomers, such as thermosetting resin, such as an epoxy resin, and acrylate, were made to construct a bridge with an activity energy line are raised, Since it excels in solvent resistance, the resin over which reactive monomers, such as acrylate and an epoxy resin, were made to construct a bridge with an activity energy line and/or heat is preferred. As a reactive monomer, especially if a bridge can be made to construct with heat or an activity energy line, will not be restricted, but. The epoxy resin which has acrylate which has two or more functional groups from transparency or a heat-resistant field (meta), and two functional groups or more is preferred, and the acrylate which has especially two or more functional groups (meta) is preferred. These resin may be used independently or may use two or more sorts together.

[0007]

As a fibrous inorganic filler (b) used by this invention, glass tissues, such as glass fiber, glass fabrics, and a nonwoven glass fabric, are raised, and since the reduction effect of a coefficient of linear expansion is especially high, glass fabrics are the most preferred. Although the thickness in particular of textiles is not limited, it is preferred that it is 30–300 micrometers. As a kind of glass, E glass, C glass, A glass, S glass, D glass, NE glass, T glass, etc. are raised, and E glass with few [ especially ] alkaline metals, S glass, T glass, and NE glass are preferred. Although the refractive index in particular of a fibrous inorganic filler (b) is not restricted, in order to show the transparency excellent in the transparent composite sheet, it is desirable for a difference with the refractive index after bridge construction of transparent resin (a) to be 0.01 or less, and 0.005 or less are more preferred.

As for the content of a fibrous inorganic filler (b), 1 to 90 % of the weight is preferred, and it is 30 to 70 % of the weight still more preferably ten to 80% of the weight more preferably. If the content of a fibrous inorganic filler

(b) is this range, it will be easy to fabricate and the effect of the reduction in linear expansion by compositeizing will be accepted.

In this invention, since the transparency of the composite sheet of this invention becomes good so that a fibrous inorganic filler (b) and resin have stuck, it is preferred to process the inorganic filler surface by publicly known finishing agents, such as a silane coupling agent. As a silane coupling agent, an epoxysilane coupling agent, a titanate system coupling agent, an aminosilane coupling agent, a silicone oil type coupling agent, etc. may be mentioned, and these may be used independently, or several sorts may compound and it may use. [0008]

Since it is available in the variety which glass powder, silica powder, alumina powder, etc. are mentioned, and has various refractive indicees as a powdered inorganic filler (c) used by this invention, glass powder is preferred. A bead, a flake, a granular type, etc. may be mentioned, powdered shape may use these independently, or several sorts may compound and it may use them.

As for the sphere equivalent diameter of a powdered inorganic filler (c), it is preferred that it is 0.5 mm or less, and it is 0.05 mm or less still more preferably 0.1 mm or less more preferably. Since surface smoothness gets worse when particle diameter is larger than 0.5 mm, it is not desirable. As for the content of a powdered inorganic filler (c), 10 to 80 % of the weight is preferred, and it is 30 to 80 % of the weight still more preferably 20 to 80% of the weight more preferably. If the content of a powdered inorganic filler (c) is this range, the improvement in sheet rigidity and the reduction effect of a coefficient-of-linear-expansion difference in every direction will be accepted.

Although the refractive index in particular of a powdered inorganic filler (c) is not restricted, in order to show the transparency excellent in the transparent composite sheet, it is desirable for a difference with the refractive index after bridge construction of transparent resin (a) to be 0.01 or less, and 0.005 or less are more preferred.

The surface may be processed and used for a powdered inorganic filler (c) by publicly known finishing agents, such as a silane coupling agent, in order to raise the transparency of a sheet, and a mechanical strength. As a silane coupling agent, an epoxysilane coupling agent, a titanate system coupling agent, an aminosilane coupling agent, a silicone oil type coupling agent, etc. may be mentioned, and these may be used independently, or several sorts may compound and it may use.

[0009]

The compound transparent sheet of this invention A transparent plate, an optical lens, the plastic plate for liquid crystal display elements, When using as the substrate for light filters, the plastic plate for organic electroluminescence display devices, a solar cell substrate, a touch panel, an optical element, an optical waveguide, an LED sealing agent, etc., it is not less than 85% that light transmission with a wavelength of 550 nm is not less than 80% desirable still more preferably. Since the efficiency using light falls when light transmission with a wavelength of 550 nm is 80% or less, optical efficiency is not preferred for an important use.

### [0010]

The transparent composite sheet of this invention A transparent plate, an optical lens, the plastic plate for liquid crystal display elements, When using as the substrate for light filters, the plastic plate for organic electroluminescence display devices, a solar cell substrate, a touch panel, an optical element, an optical waveguide, an LED sealing agent, etc., It is preferred that a 30–150 \*\* mean coefficient of linear expansion is 40 ppm or less, and it is 20 ppm or less most preferably 30 ppm or less. For example, when this composite material composition is used for an active-matrix display device board and this upper limit is exceeded, there is a possibility that problems, such as curvature and an open circuit of aluminum wiring, may arise in that manufacturing process.

اد موسوق السيئي <u>يوني دو.</u> د موسوق السيئي <u>مي</u>يروي

In order that the transparent composite sheet of this invention may raise smooth nature, the coated layer of resin may be provided in both sides. It is preferred to have the outstanding transparency, heat resistance, and chemical resistance as resin which carries out a coat, and polyfunctional acrylate, an epoxy resin, etc. can specifically be raised. As thickness of the resin which carries out a coat, 0.1–50 micrometers is preferred and 0.5–30 micrometers is more preferred.

The transparent composite sheet of this invention may provide the gas barrier layer and transparent electrode layer to a steam or oxygen if needed.

In the transparent composite sheet of this invention, bulking agents, such as a small amount of antioxidants, an ultraviolet ray absorbent, dyes and pigments, and other inorganic fillers, etc. may be included in the range which

does not spoil the characteristics, such as transparency, solvent resistance, and heat resistance, if needed.
[0011]

[Example]

Hereafter, although an example explains the contents of this invention in detail, this invention is not limited to the following examples, unless the gist is exceeded.

(Example 1)

Cycloaliphatic-epoxy-resin (Daicel Chemical Industries EHPE3150) 80 weight section, Bisphenol smooth S form epoxy resin (Dainippon Ink & Chemicals Epiclon EXA1514) 20 weight section, Methylhexahydrophthalic anhydride (New Japan Chemical RIKASHIDDO MH-700) 75 weight section, Crushing glass powder 90 weight section with a ball equivalent average diameter of 10 micrometers, 1, and 3 dioxolane 60 weight section were mixed with tetraphenyl-phosphonium-bromide (Hokko Chemical Industry TPP-PB) 0.5 weight section and the refractive index 1.50, and it was considered as the varnish. After burning NE textile-glass-yarn glass fabrics (Nitto Boseki NEA2319E) of the refractive index 1.503, carrying out the broth of this at 80 micrometers in thickness and removing an organic matter, It \*\*\*\* to what was processed by gamma—glycidoxypropyltrimetoxysilane (epoxysilane), After drying for 5 minutes at 125 \*\*, put between the glass plate which carried out releasing treatment, and heat for 2 hours, it was made to harden at 200 \*\*, pressing by the pressure of 30 kg/cm² using a vacuum press machine, and the 0.1-mm—thick transparent composite sheet was obtained.

[0012]

(Example 2)

Triglycidyl isocyanurate (Nissan Chemical Industries TEPIC) 100 weight section, Methylhexahydrophthalic anhydride (New Japan Chemical RIKASHIDDO MH-700) 147 weight section, With the refractive index 1.50, to the resin which carried out melting mixing of the amount part of tetraphenyl-phosphonium-bromide (Hokko Chemical Industry TPP-PB) duplexs at 110 \*\*, crushing glass powder 124 weight section with a ball equivalent average diameter of 10 micrometers was added, and it mixed to it. After impregnating the glass fabrics of the example 1 statement and defoaming this, it put between the glass plate which carried out releasing treatment, and it heated in oven for of of 100 \*\* \* 2 hours [ +120 \*\* ] \* 2 hours [ +150 \*\* ] \* 2 hours +175 \*\*\* 2 hours, and the 0.1-mm-thick transparent composite sheet was obtained. [0013]

(Comparative example 1)

Triglycidyl isocyanurate (Nissan Chemical Industries TEPIC) 100 weight section, Methylhexahydrophthalic anhydride (New Japan Chemical RIKASHIDDO MH-700) 147 weight section, The resin which carried out melting mixing of the amount part of tetraphenyl-phosphonium-bromide (Hokko Chemical Industry TPP-PB) duplexs at 110 \*\*, Heat for 2 hours, it was made to harden at 200 \*\*, having put between the glass plate which carried out releasing treatment, and pressing by the pressure of 30 kg/cm² using a vacuum press machine, after the glass fabrics of the example 1 statement were impregnated, and the 0.1-mm-thick transparent composite sheet was obtained.

[0014]

(Comparative example 2)

Triglycidyl isocyanurate (Nissan Chemical Industries TEPIC) 100 weight section, Methylhexahydrophthalic anhydride (New Japan Chemical RIKASHIDDO MH-700) 147 weight section, To the resin which carried out melting mixing at 110 \*\*, the amount part of tetraphenyl-phosphonium-bromide (Hokko Chemical Industry TPP-PB) duplexs. It put between the glass plate which added crushing glass powder 90 weight section with a ball equivalent average diameter of 10 micrometers with the refractive index 1.50, was mixed, and carried out releasing treatment, heated in oven for of of 100 \*\* \* 2 hours [ +120 \*\* ] \* 2 hours [ +150 \*\* ] \* 2 hours +175 \*\*\* 2 hours, and a 0.1-mm transparent sheet was obtained. [0015]

About the transparent composite sheet produced as mentioned above, the various characteristics were evaluated by the method shown below.

a) Light transmission

The light transmission of 550 nm was measured with the spectrophotometer U3200 (made by Hitachi).

b) Mean coefficient of linear expansion

Using the TMA/SS 120C type heat stress distortion-measurement device made from SEIKO Electron, in the

bottom of a nitrogen atmosphere, and 1 minute, at a rate of 5 \*\*, temperature was raised from 30 \*\* to 400 \*\*, and was held for 20 minutes, and the value at the time of 30 \*\* - 150 \*\* was measured and calculated. Load was 5 g and it measured in \*\*\*\* mode. Measurement used the quartz \*\*\*\* zipper (construction material: quartz, coefficient of linear expansion of 0.5 ppm) designed uniquely. The Inconel zipper currently generally used had fault in that the linear expansion of itself is high, or the support gestalt of a sample, when applied to the thick sheet over 100 micrometers, it became larger than the result which the coefficient of linear expansion measured by compressed mode, and there was a problem to which measurement dispersion becomes large. Therefore, the quartz \*\*\*\* zipper was designed uniquely and it decided to measure a coefficient of linear expansion using it. By using this \*\*\*\* zipper, it is checking that it can measure with the almost same value as the case where it measures by compressed mode.

About Examples 1 and 2 and the comparative example 1, the cross direction of glass fabrics was defined as X, the rolling—up direction was defined as Y, the arbitrary 2—ways which go direct were defined as X and Y about the comparative example 2, respectively, measurement which added \*\*\*\* in each direction was performed, and the difference of the coefficient of linear expansion of the direction of X and the direction of Y was evaluated. c) Rigidity

Bending was added to the sheet and appearance and tactile feeling estimated stiffness and the ease of being divided.

[0016]

Light transmission is 80%, a mean coefficient of linear expansion is 18 ppm, and Example 1 does not have a coefficient-of-linear-expansion difference of the direction of X-Y, is excellent in stiffness, and can be used as a substrate for display devices.

Light transmission is 83%, a mean coefficient of linear expansion is 19 ppm, and the coefficient—of—linear—expansion difference of the direction of X-Y is as small as 1 ppm, is excellent in stiffness, and can use Example 2 as a substrate for display devices.

Although light transmission was [ the mean coefficient of linear expansion ] 17 ppm 86%, it was as large as 4 ppm, and the comparative example 1 lacked in stiffness and was insufficient for using it as a substrate for display devices. [ of the coefficient-of-linear-expansion difference of the direction of X-Y ] Although a mean coefficient of linear expansion is 32 ppm and the coefficient-of-linear-expansion difference of

the direction of X-Y did not have light transmission 84%, the substrate lacked in rigidity, and when the comparative example 2 was bent, it broke easily, and was insufficient for using it as a substrate for display devices.

[0017]

[Effect of the Invention]

The compound composite sheet obtained by this invention can be conveniently used as an optical sheet, the plastic plate for display devices, or a substrate for active-matrix display devices.

[Translation done.]

#### \* NOTICES \*

JPO and INPIT are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.

2.\*\*\*\* shows the word which can not be translated.

3.In the drawings, any words are not translated.

#### CORRECTION OR AMENDMENT

[Kind of official gazette]Printing of amendment by the regulation of 2 of Article 17 of Patent Law [Section classification] The 3rd classification of the part III gate [Publication date]May 17 (2007.5.17), Heisei 19

[Publication No.]JP,2005-15624,A (P2005-15624A)

[Date of Publication] January 20, Heisei 17 (2005.1.20)

[Annual volume number] Public presentation / registration gazette 2005-003

[Application number]application for patent 2003-182047 (P2003-182047)

[International Patent Classification]

COSL 101/00 (2006.01)

CO8J 5/18 (2006.01)-

CO8K 3/00 (2006.01)

CO8K 7/04 (2006.01)

GO2B 1/04 (2006.01)

GO2F 1/1333 (2006.01)

[FI]

CO8L101/00

CO8J 5/18

CO8K 3/00

CO8K 7/04

GO2B 1/04

GO2F 1/1333 500

[Written amendment]

[Filing date]March 22, Heisei 19 (2007.3.22)

[Amendment 1]

[Document to be Amended]Specification

[Item(s) to be Amended]Claim

[Method of Amendment]Change

[The contents of amendment]

[Claim(s)]

[Claim 1] A transparent composite sheet which consists of transparent resin (a), a fibrous inorganic filler (b), and

a powdered inorganic filler (c).

[Claim 2] The transparent composite sheet according to claim 1 whose difference of a refractive index after hardening of said transparent resin (a) and a refractive index of a fibrous inorganic filler (b) and a powdered inorganic filler (c) is 0.01 or less.

[Claim 3] The transparent composite sheet according to claim 1 or 2 whose Abbe number after hardening of said transparent resin (a) is 45 or more.

[Claim 4] claims 1-3 in which said fibrous inorganic fillers (b) are glass tissue -- a transparent composite sheet any or given in 1 paragraph.

[Claim 5] claims 1-4 in which said powdered inorganic fillers (c) are powder with a ball equivalent average diameter of 0.5 mm or less — a transparent composite sheet any or given in 1 paragraph.

[Claim 6] claims 1-5 whose light transmission in wavelength of 550 nm is not less than 80% --- a transparent composite sheet any or given in 1 paragraph.

[Claim 7] claims 1-6 whose 30-150 \*\* mean coefficients of linear expansion are 40 ppm or less -- a transparent composite sheet any or given in 1 paragraph.

[Translation done.]

#### (19) 日本国特許庁(JP)

## (12) 公 開 特 許 公 報(A) (11) 特許出願公開番号

特配2005-15624 (P2005-15624A)

(43) 公開日 平成17年1月20日(2005.1.20)

(51) Int.C1. <sup>7</sup>		FI	<u> </u>					テー	7 <b>]-</b> }	: (参	<del></del>
∞ C08L1	01/00		101/00					2 H	oec		
C081	5/18	C081	5/18					4 F	O 7 1		
COSK	3/00	CO8K	3/00					4 J (	002		
COSK	7/04	CO8K	7/04								
GO2B	1/04	GO2B	1/04								
		審査請求	未請求	請求基	頃の	数 8	OL	(全)	7 頁)	最終	真に続く
(21) 出願番号		特願2003-182047 (P2003-182047)	(71) 出	頭人	000	00214	1				
(22) 出願日		平成15年6月26日 (2003.6.26)			住友	۲ペー	クライ	卜株式	会社		
					東方	都品	川区東	品川2	丁目5	番8号	
			(72) 発	明者	坂4	真	伸			,	
					東方	都品	川区東	品川2	丁目5	番8号	住友
						-		式会社	内		
			(72)発	明者		澄					
										番8号	住友
								式会社			
			Fター.	ム (参	考)	2H090			JC01	JC06	JD04
							JD13	JD18			
					•	4F071	AA31	AA42	AB28	AD00	ADO1
			1				AD06	AE17	AF30Y		AH12
							BA02	BB01	BC01	BC17	
									最	終頁に	続く

(54) 【発明の名称】透明複合シート

### (57)【要約】

【課題】線膨張係数が小さく、透明性、耐熱性、耐溶剤性に優れ、高い表面平滑性を有し 、光学シート、表示素子用プラスチック基板又はアクティブマトリックス表示素子用基板 として好適に利用できる透明複合シートを提供する。

【解決手段】透明樹脂 (a) と繊維状無機フィラー (b) 、粉末状無機フィラー (c) か らなり、透明樹脂(a)の硬化後の屈折率と、繊維状無機フィラー(b)、及び粉末状無 機フィラー (c) の屈折率の差が0.01以下であり、透明樹脂(a)の硬化後のアッベ 数が45以上である透明複合シート。表示素子用基板として利用するには波長550nm における光線透過率が80%以上、30~150℃の平均線膨張係数が40ppm以下で あることが望ましい。

### 【特許請求の範囲】

#### 【請求項1】

透明樹脂 (a) と繊維状無機フィラー (b) 、粉末状無機フィラー (c) からなる透明複 合シート。

### 【請求項2】

前記透明樹脂(a)の硬化後の屈折率と、繊維状無機フィラー(b)、及び粉末状無機フ ィラー (c) の屈折率の差が0.01以下である請求項1記載の透明複合シート。

#### 【請求項3】

前記透明樹脂(a)の硬化後のアッベ数が45以上である請求項1または2記載の透明複 .... 合シート。

#### 【請求項4】

前記繊維状無機フィラー(b)がガラス繊維布である請求項1~3何れか一項記載の透明

#### 【請求項5】

前記粉末状無機フィラー (c) が球相当平均直径 0.5 mm以下の粉末である請求項 1~ 4何れか一項記載の透明複合シート。

#### 【請求項6】

波長550nmにおける光線透過率が80%以上である請求項1~5何れか一項記載の透 明複合シート。

### 【請求項7】

30~150℃の平均線膨張係数が40ppm以下である請求項1~6何れか一項記載の 透明複合シート。

#### 【請求項8】

請求項1~7何れか一項記載の透明複合シートを利用した表示素子。

### 【発明の詳細な説明】

#### $[0\ 0]0\ 1\ 1$

#### 【発明の属する技術分野】

本発明は、線膨張係数が小さく、高い剛性を有し、透明性、耐熱性、耐溶剤性に優れ、ガ ラスに代替可能な透明複合シートに関する。この透明複合体組成物は、例えば、液晶表示 用基板、有機EL表示素子基板、カラーブィルター用基板、タッチパネル用基板、太陽電 30 池基板などの光学シート、透明板、光学レンズ、光学素子、光導波路、LED封止材等に 好適に用いることができる。

### [0002]

### 【従来の技術】

一般に、液晶表示素子用基板、カラーフィルター基板、有機EL表示素子用基板、太陽電 池用基板等としては、ガラス板が多く用いられている。しかし、割れ易い、曲げられない 、比重が大きく軽量化に不向き等の問題から、近年、ガラス板の代わりにプラスチック素 材を用いる試みが数多く行われるようになってきた。例えば、特許文献1や特許文献2に は、エポキシ樹脂、酸無水物系硬化剤及び硬化触媒を含むエポキシ樹脂組成物を硬化して 得られる硬化体からなる液晶表示素子用透明樹脂基板が記載されている。 しかしながら 40 、従来のガラス代替用プラスチック材料は、線膨張係数が大きいため、例えばアクティブ マトリックス表示素子基板に用いるとその製造工程において反りやアルミ配線の断線など の問題が生じ、適用が困難である。そこで、線膨張係数を低減するために樹脂と同等の屈 折率を有する無機フィラーを樹脂と複合化することがよく行われている。

ガラス繊維布等と樹脂を複合した場合、線膨張係数は低減され、曲げても割れにくくなる が、基板が剛直性に欠けることがある。また、ガラス繊維の構成に応じて線膨張係数に異 方性が生じることがある。これらを回避するためには複数枚の基板を積層して用いるなど する必要があった。

一方、粉末状の無機フィラーと樹脂とを複合した場合、線膨張係数の異方性は生じないも のの、線膨張係数の低減が十分でない、曲げた際に割れやすいという問題があった。

[0003]

【特許文献1】

特開平6-337408号公報

【特許文献2】

特開平7-120740号公報

[0004]

【発明が解決しようとする課題】

本発明は、低線膨張係数で透明性、耐熱性、耐溶剤性に優れ、高い剛性を有し、透明板、 光学レンズ、液晶表示素子用プラスチック基板、カラーフィルター用基板、有機EL表示 素子用プラスチック基板、太陽電池基板、タッチパネル等に好適に用いられる透明複合シ 10 ートを提供することを目的とするものである。

[0005]

【課題を解決するための手段】

本発明者らは、上記課題を達成すべく鋭意検討した結果、透明樹脂(a)とガラス繊維布(b)、粉末無機フィラー(c)からなる透明複合シートが、ガラス繊維布による線膨張低減効果と、粉末無機フィラーによる剛性向上効果、線膨張係数の異方性の低減効果により、低線膨張係数で高い剛性を有し、透明性、耐熱性、耐溶剤性に優れ、透明板、光学レンズ、液晶表示素子用プラスチック基板、カラーフィルター用基板、有機EL表示素子用プラスチック基板、太陽電池基板、タッチパネル等に好適に用いられることを見出し、本発明に至った。

すなわち本発明は、

- (1) 透明樹脂(a)と繊維状無機フィラー(b)、粉末状無機フィラー(c)からなる透明複合シート、
- (2) 透明樹脂(a)の硬化後の屈折率と、繊維状無機フィラー(b)、及び粉末状無機フィラー(c)の屈折率の差が0.01以下である(1)の透明複合シート、
- (3) 透明樹脂 (a) の硬化後のアッベ数が 4 5 以上である (1) 、 (2) の透明複合シート、
- (4) 繊維状無機フィラー(b)がガラス繊維布である(1)~(3)の透明複合シート、
- (5) 粉末状無機フィラー(c)が球相当平均直径0.5mm以下の粉末である(1) <sup>3</sup>~(4)の透明複合シート、
- ・ 波長550nmにおける光線透過率が80%以上である(1)~(5)の透明複合シート、
- ・ 30~150℃の平均線膨張係数が40ppm以下である(1)~(6)の透明複合シート。
- (8) 透明複合シートが、光学シート、表示素子用プラスチック基板又はアクティブマ トリックス表示素子用基板である(1)~(7)の透明複合シート、 である。

[0006]

【発明の実施の形態】

以下、本発明を詳細に説明する。

本発明中の透明樹脂(a)とは、可視光線の透過性を有する樹脂を示す。本発明の透明樹脂の透明性は、シートにした際の550nmでの光線透過率が80%以上のものが好ましく、より好ましくは85%以上、最も好ましくは90%以上である。表示素子用基板として用いる場合には、85%以上が好ましい。例としては、エポキシ樹脂などの熱硬化性樹脂、アクリレートなどの反応性モノマーを活性エネルギー線で架橋させた樹脂などがあげられ、耐溶剤性に優れていることからアクリレートやエポキシ樹脂などの反応性モノマーを活性エネルギー線および/または熱によって架橋させた樹脂が好ましい。反応性モノマーを活性エネルギー線および/または熱によって架橋させた樹脂が好ましい。反応性モノマーとしては、熱や活性エネルギー線で架橋させることができるものであれば特に制限されないが、透明性や耐熱性の面から2つ以上の官能基を有する(メタ)アクリレートや2つ 50

20

40

以上の官能基を有するエポキシ樹脂が好ましく、特に2つ以上の官能基を有する(メタ) アクリレートが好ましい。これら樹脂は、単独で用いても2種以上を併用してもよい。 【0007】

本発明で用いる繊維状無機フィラー(b)としては、ガラス繊維、ガラスクロスやガラス不織布などのガラス繊維布があげられ、中でも線膨張係数の低減効果が高いことから、ガラスクロスが最も好ましい。繊維の厚みは特に限定されるものではないが、30~300  $\mu$  m であることが好ましい。ガラスの種類としては、Eガラス、Cガラス、Aガラス、Sガラス、NEガラス、Tガラスなどがあげられ、中でもアルカリ金属が少ないEガラス、Sガラス、Tガラス、NEガラスが好ましい。繊維状無機フィラー(b)の屈折率は特に制限されないが、透明複合シートが優れた透明性を示すには、透明樹脂(a)の架橋後の屈折率との差が0.01以下であることが望ましく、0.005以下がより好ましい。

繊維状無機フィラー(b)の含有量は、1~90重量%が好ましく、より好ましくは10~80重量%、さらに好ましくは30~70重量%である。繊維状無機フィラー(b)の含有量がこの範囲であれば、成形し易く、複合化による低線膨張化の効果が認められる。本発明においては、繊維状無機フィラー(b)と樹脂とが密着しているほど、本発明の複合シートの透明性が良くなるため、無機フィラー表面をシランカップリング剤などの公知の表面処理剤で処理することが好ましい。シランカップリング剤としては、エポキシシランカップリング剤、チタネート系カップリング剤、アミノシランカップリング剤及びシリコーンオイル型カップリング剤等が挙げられ、これらを単独で用いても数種複合して用い 20 てもよい。

### [0008]

本発明で用いる粉末状無機フィラー(c)としては、ガラス粉末、シリカ粉末、アルミナ粉末等が挙げられ、種々の屈折率を持つ品種が入手可能であることから、ガラス粉末が好ましい。粉末の形状はビーズ、フレーク、破砕状等が挙げられ、これらを単独で用いても数種複合して用いても良い。

粉末状無機フィラー (c) の球相当直径は0.5 mm以下であることが好ましく、より好ましくは0.1 mm以下、さらに好ましくは0.05 mm以下である。0.5 mmより粒径が大きい場合表面平滑性が悪化するため好ましくない。粉末状無機フィラー (c) の含有量は10~80重量%が好ましく、より好ましくは20~80重量%、さらに好ましくは30~80重量%である。粉末状無機フィラー (c) の含有量がこの範囲であれば、シート剛性の向上、縦横の線膨張係数差の低減効果が認められる。

粉末状無機フィラー (c) の屈折率は特に制限されないが、透明複合シートが優れた透明性を示すには、透明樹脂 (a) の架橋後の屈折率との差が (a) 0 1以下であることが望ましく、(a) 0 0 5以下がより好ましい。

粉末状無機フィラー(c)は、シートの透明性、機械的強度を向上させるためにその表面をシランカップリング剤などの公知の表面処理剤で処理して用いてもよい。シランカップリング剤としては、エポキシシランカップリング剤、チタネート系カップリング剤、アミノシランカップリング剤及びシリコーンオイル型カップリング剤等が挙げられ、これらを単独で用いても数種複合して用いてもよい。

### [0009]

本発明の複合透明シートを、透明板、光学レンズ、液晶表示素子用プラスチック基板、カラーフィルター用基板、有機EL表示素子用プラスチック基板、太陽電池基板、タッチパネル、光学素子、光導波路、LED封止材等として用いる場合は、波長550nmの光線透過率が80%以上であることが好ましく、さらに好ましくは、85%以上である。波長550nmの光線透過率が80%以下の場合は、光を利用する効率が低下するので、光効率が重要な用途には好ましくない。

#### [0010]

本発明の透明複合シートを、透明板、光学レンズ、液晶表示素子用プラスチック基板、カラーフィルター用基板、有機EL表示素子用プラスチック基板、太陽電池基板、タッチパ 50

ネル、光学素子、光導波路、LED封止材等として用いる場合は、30~150℃の平均線膨張係数が40ppm以下であることが好ましく、より好ましくは30ppm以下、最も好ましくは20ppm以下である。例えば、この複合体組成物をアクティブマトリックス表示素子基板に用いた場合、この上限値を越えると、その製造工程において反りやアルミ配線の断線などの問題が生じる恐れがある。

本発明の透明複合シートは、平滑性を向上させるために両面に樹脂のコート層を設けても良い。コートする樹脂としては、優れた透明性、耐熱性、耐薬品性を有していることが好ましく、具体的には多官能アクリレートやエポキシ樹脂などをあげることができる。コートする樹脂の厚みとしては、 $0.1\sim50~\mu$  mが好ましく、 $0.5\sim30~\mu$  mがより好ましい。

本発明の透明複合シートは、必要に応じて水蒸気や酸素に対するガスバリア層や透明電極層を設けても良い。

また、本発明の透明複合シート中には、必要に応じて、透明性、耐溶剤性、耐熱性等の特性を損なわない範囲で、少量の酸化防止剤、紫外線吸収剤、染顔料、他の無機フィラー等の充填剤等を含んでいても良い。

## [0011]

#### 【実施例】

以下、本発明の内容を実施例により詳細に説明するが、本発明は、その要旨を越えない限 り以下の例に限定されるものではない。

#### (実施例1)

脂環式エポキシ樹脂(ダイセル化学工業製EHPE3150)80重量部、ビスフェノールS型エポキシ樹脂(大日本インキ化学工業製エピクロンEXA1514)20重量部、メチルヘキサヒドロ無水フタル酸(新日本理化製リカシッドMH-700)75重量部、テトラフェニルホスホニウムブロマイド(北興化学工業製TPP-PB)0.5重量部、屈折率1.50で球相当平均直径10 $\mu$ mの破砕ガラス粉末90重量部、1,3ジオキソラン60重量部を混合してワニスとした。これを、厚さ80 $\mu$ mで屈折率1.503のNEガラス系ガラスクロス(日東紡績製NEA2319E)を焼きだしして有機物を除去した後、 $\gamma$ -グリシドキシプロピルトリメトキシシラン(エポキシシラン)で処理したものに含侵し、125℃で5分間乾燥した後、離型処理したガラス板に挟み込み、真空プレス機を用いて30kg/cm²の圧力でプレスしながら200℃で2時間加熱して硬化させ 30、厚さ0.1mmの透明複合シートを得た。

## [0012]

### (実施例2)

トリグリシジルイソシアヌレート(日産化学工業製TEPIC)100重量部、メチルへキサヒドロ無水フタル酸(新日本理化製リカシッドMH-700)147重量部、テトラフェニルホスホニウムプロマイド(北興化学工業製TPP-PB)2重量部を110℃で溶融混合した樹脂に、屈折率1.50で球相当平均直径10 $\mu$ mの破砕ガラス粉末124重量部を加え混合した。これを、実施例1記載のガラスクロスに含浸し、脱泡した後離型処理したガラス板に挟み込み、オーブン中で100℃\*2時間+120℃\*2時間+150℃\*2時間+175℃\*2時間加熱し、厚さ0.1mmの透明複合シートを得た。

## [0013]

(比較例1)

トリグリシジルイソシアヌレート(日産化学工業製TEPIC)100重量部、メチルへキサヒドロ無水フタル酸(新日本理化製リカシッドMH-700)147重量部、テトラフェニルホスホニウムプロマイド(北興化学工業製TPP-PB)2重量部を110℃で溶融混合した樹脂を、実施例1記載のガラスクロスに含浸した後離型処理したガラス板に挟み込み、真空プレス機を用いて30kg/cm²の圧力でプレスしながら200℃で2時間加熱して硬化させ、厚さ0.1mmの透明複合シートを得た。

### [0014]

(比較例2)

20

4(

トリグリシジルイソシアヌレート (日産化学工業製TEPIC) 100重量部、メチルへ キサヒドロ無水フタル酸(新日本理化製リカシッドMH-700)147重量部、テトラ フェニルホスホニウムプロマイド(北興化学工業製TPP-PB)2重量部を110℃で 溶融混合した樹脂に、屈折率1.50で球相当平均直径10μmの破砕ガラス粉末90重 量部を加え混合し、離型処理したガラス板に挟み込んで、オーブン中で100℃\*2時間 +120℃\*2時間+150℃\*2時間+175℃\*2時間加熱して、0.1mmの透明 シートを得た。

## [0015]

以上のようにして作製した透明複合シートについて、下記に示す方法により、各種特性を 評価した。

a) 光線透過率

分光光度計U3200 (日立製作所製)で550nmの光線透過率を測定した。

b) 平均線膨張係数

セイコー電子(株)製TMA/SS120C型熱応力歪測定装置を用いて、窒素雰囲気下 、1分間に5℃の割合で温度を30℃から400℃まで上昇させて20分間保持し、30 ℃~150℃の時の値を測定して求めた。荷重を5gにし、引張モードで測定を行った。 測定は、独自に設計した石英引張チャック (材質:石英,線膨張係数0.5ppm)を用 いた。一般に使われているインコネル製のチャックは、それ自体の線膨張が高いことやサ ンプルの支持形態に不具合があり、100μmを超える厚いシートに適用すると線膨張係 数が圧縮モードで測定した結果よりも大きくなったり、測定ばらつきが大きくなる問題が 20 あった。したがって、石英引張チャックを独自に設計し、それを用いて線膨張係数を測定 することにした。この引張チャックを用いることにより、圧縮モードで測定した場合とほ は同様の値で測定できることを確認している。

また、実施例1、2、比較例1については、ガラスクロスの幅方向をX、巻取り方向をY と定義し、比較例 2 については任意の直行する 2 方向をそれぞれ X、 Y と定義し、それぞ れの方向に引張を加えた測定を行い、X方向とY方向の線膨張係数の差を評価した。

c) 剛性

シートに曲げを加え、剛直性、割れやすさを外観、触感により評価した。

[0016]

実施例1は、光線透過率が80%、平均線膨張係数が18ppmで、X-Y方向の線膨張 30 係数差が無く、剛直性に優れ、表示素子用基板として使用できるものであった。

実施例2は、光線透過率が83%、平均線膨張係数が19ppmで、X-Y方向の線膨張 係数差が1ppmと小さく、剛直性に優れ、表示素子用基板として使用できるものであっ

比較例1は、光線透過率が86%、平均線膨張係数が17ppmであったが、X-Y方向 の線膨張係数差が4ppmと大きく、剛直性に欠け、表示素子用基板として使用するには 不十分であった。

比較例2は、光線透過率が84%、平均線膨張係数が32ppmで、X-Y方向の線膨張 係数差は無かったが、基板が剛性に欠け、曲げた際に割れやすく、表示素子用基板として 使用するには不十分であった。

[0017]

【発明の効果】

本発明により得られる複合複合シートは、光学シート、表示素子用プラスチック基板又は アクティブマトリックス表示素子用基板として好適に用いることができる。

40

10

フロントページの続き

(51)Int.Cl.'

FΙ

テーマコード (参考)

G02F 1/1333

G02F 1/1333 500

Fターム(参考) 43002 BC041 CD001 CD111 DE147 DJ017 DL006 DL007 FA017 FA046 FB087 FB096 FB097 FB166 FB167 FD016 FD027 GP00

and and find the same a

【公報種別】特許法第17条の2の規定による補正の掲載

【部門区分】第3部門第3区分

【発行日】平成19年5月17日(2007.5.17)

### 【公開番号】特開2005-15624(P2005-15624A)

【公開日】平成17年1月20日(2005.1.20)

【年通号数】公開·登録公報2005-003

【出願番号】特願2003-182047(P2003-182047)

### 【国際特許分類】

C 0 8 L	101/00	(2006.01)
C 0 8 J	5/18	(2006.01)
C 0 8 K	3/00	(2006.01)
C 0 8 K	7/04	(2006.01)
G 0 2 B	1/04	(2006.01)
G 0 2 F	1/1333	(2006.01)
_		

### [FI]

C 0 8 L 101/00

C 0 8 J 5/18

C 0 8 K 3/00

C 0 8 K 7/04

G 0 2 B 1/04

G 0 2 F 1/1333 5 0 0

## 【手続補正書】

【提出日】平成19年3月22日(2007.3.22)

【手続補正1】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】特許請求の範囲

【補正方法】変更

【補正の内容】

【特許請求の範囲】

【請求項1】 透明樹脂(a)と繊維状無機フィラー(b)、粉末状無機フィラー(c)からなる透明複合シート。

【請求項2】 前記透明樹脂(a)の硬化後の屈折率と、繊維状無機フィラー(b)、及び粉末状無機フィラー(c)の屈折率の差が0.01以下である請求項1記載の透明複合シート。

【請求項3】 前記透明樹脂(a)の硬化後のアッベ数が45以上である請求項1または2記載の透明複合シート。

【請求項4】 前記繊維状無機フィラー(b)がガラス繊維布である請求項1~3何れか 一項記載の透明複合シート。

【請求項5】 前記粉末状無機フィラー (c) が球相当平均直径0.5 mm以下の粉末である請求項1~4何れか一項記載の透明複合シート。

【請求項6】 波長550 nmにおける光線透過率が80%以上である請求項1~5何れか一項記載の透明複合シート。

【請求項7】 30~150℃の平均線膨張係数が40ppm以下である請求項1~6何れか一項記載の透明複合シート。